



## Utilisation de faisceaux d'ions radioactifs dans le cadre du GDR Practis

A. Chevarier, N. Chevarier, J.-C. Duclot, N. Millard-Pinard, N. Moncoffre

### ► To cite this version:

A. Chevarier, N. Chevarier, J.-C. Duclot, N. Millard-Pinard, N. Moncoffre. Utilisation de faisceaux d'ions radioactifs dans le cadre du GDR Practis. Colloque GANIL 11, Jun 1997, Seignosse, pp.6. in2p3-00002402

**HAL Id: in2p3-00002402**

**<https://hal.in2p3.fr/in2p3-00002402>**

Submitted on 9 Nov 1998

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

EE

Institution

# **UTILISATION DE FAISCEAUX D'IONS RADIOACTIFS DANS LE CADRE DU GDR PRACTIS**

**Physicochimie des Actinides et autres Radioéléments en Solutions et aux Interfaces**

**A. Chevarier, N. Chevarier, J.C. Duclot, N. Millard-Pinard, N. Moncoffre**

**Institut de Physique Nucléaire de Lyon**

## **A. Présentation du GDR PRACTIS**

Le GDR PRACTIS est placé sous la tutelle des deux organismes CNRS et CEA, le CNRS intervenant à travers le département des Sciences Chimique et l'IN2P3 et le CEA à travers la Direction du Cycle du Combustible. Ses responsables sont : R. Guillaumont (CNRS-IN2P3) et C. Madic (CEA/DCC). L'ANDRA et EDF, directement intéressés par les recherches concernant la gestion des déchets radioactifs, sont parties prenantes dans le GDR. Ces recherches s'inscrivent dans le cadre des recherches multidisciplinaires définies par la loi du 30 décembre 1991. Cet aspect est nettement affirmé depuis que PRACTIS est intégré dans le programme multidisciplinaire du CNRS - PACE (Programme Aval du Cycle Electronucléaire).

### **Objectifs généraux**

Les objectifs présentés ci-après sont définis dans le descriptif du GDR soumis à l'examen du Comité National du CNRS en 1994. Ces objectifs sont toujours valables.

Le devenir des combustibles nucléaires pose aux scientifiques des problèmes associés à deux interrogations :

- Comment retraiter au mieux les combustibles nucléaires usés, dans le cas du cycle dit fermé.
- Comment gérer au mieux les déchets radioactifs, dans les cas des cycles dits ouvert (non retraitement) et fermé.

En amont des opérations industrielles déjà mises en oeuvre, un effort considérable de recherche fondamentale doit être poursuivi dans certains domaines et doit être initié dans d'autres. En particulier :

- le retraitement des combustibles usés, dans sa version améliorée, nécessite de connaître le comportement chimique des produits de fission (qui représentent un tiers des éléments du tableau périodique) et des actinides : uranium, neptunium, plutonium, américium et curium, essentiellement dans des milieux biphasiques liquides afin de pouvoir les séparer les uns des autres. La décontamination des effluents radioactifs, issus des opérations de retraitement, nécessite les mêmes connaissances étendues aux systèmes liquides/solides.
- lors des phases d'entreposage, mais surtout de stockage, la gestion des déchets radioactifs nécessite de connaître le comportement de ces mêmes éléments dans des solutions aqueuses naturelles (eaux de surface et eaux profondes) en présence de diverses phases minérales et les mécanismes de leur migration. Il s'agit d'identifier à la fois les espèces dissoutes, les espèces colloïdales et les espèces sorbées. Dans ce cas, pour ce qui concerne les produits de fission on peut limiter les recherches aux éléments correspondants aux radionucléides à vie longue qui seuls ont de l'importance au regard de la sûreté des stockages.

De nombreuses données de base de nature thermodynamique, cinétique, structurale, font défaut pour la modélisation des phénomènes qui contrôlent le devenir des éléments dans les sites de stockage. La modélisation est particulièrement importante dans le cas de la gestion des déchets radioactifs car il s'agit d'extrapoler des résultats de laboratoire à des périodes de temps incommensurables avec celles pour lesquelles on fait généralement des prévisions.

L'objectif principal du GDR est donc de coordonner et d'harmoniser les efforts des laboratoires participants pour acquérir les connaissances de base manquantes et affiner les données connues, dans les domaines du traitement, du conditionnement et du stockage des matières radioactives issues de l'industrie nucléaire.

Cela nécessite de définir des thèmes scientifiques de recherche fondamentale.

### **Thèmes de recherche**

Trois grands thèmes de recherche ont été définis :

- 1) Physicochimie des actinides et autres radioéléments en solution.
- 2) Chimie en solutions et transferts liquide-liquide.
- 3) Chimie en solutions et transferts liquide-solide.

L'utilisation de faisceaux d'ions radioactifs est proposée dans le cadre du thème 3 et concerne plus précisément la migration des radionucléides dans les matériaux barrières naturels ou artificiels. En effet dans les modèles actuels de migration d'un élément et de lixiviation d'un élément à partir d'un solide on utilise son coefficient de distribution global et sa vitesse de lixiviation, qui sont des paramètres opérationnels et circonstanciels. Les recherches entreprises visent à mieux connaître les phénomènes de base et proposer des modèles prédictifs plus fiables.

## **B. Utilisation de faisceaux d'ions radioactifs**

L'implantation ionique, méthode qui permet d'introduire de manière très contrôlée des traceurs dans des matériaux très divers est une méthode innovante pour étudier la migration des éléments dans les matériaux de confinement ou de rétention et les phénomènes de transfert (échanges entre solide et phase aqueuse). Le nombre d'ions implantés, ainsi que leur profondeur de pénétration sont déterminés par le biais de la fluence et de l'énergie d'implantation. Du fait même des processus de ralentissement des ions dans le milieu, l'implantation s'accompagne de la création de défauts (guérissables par des recuits post-implantation) ainsi que d'une pulvérisation de surface. Ces phénomènes, s'ils ne sont pas directement modifiables, sont très bien modélisés. Dans le cas d'implantation d'ions radioactifs, les fluences restant inférieures à  $10^{12}$  at/cm<sup>2</sup>, la création de nouvelles phases sera très peu probable.

## **Etude de la diffusion par implantation d'ions radioactifs utilisés comme traceurs.**

Selon la période des radioisotopes les implantations seront effectuées avec des fluences comprises entre  $10^8$  et  $10^{12}$  atomes/cm<sup>2</sup>. A cela, il y a deux intérêts.

- L'utilisation de faibles fluences diminue très fortement la probabilité d'endommagement du matériau.

- Ces fluences reproduisent les ordres de grandeurs des teneurs en radionucléides observées ou prévisibles dans les matériaux barrières. Elles permettent de ce fait des mesures réalistes des données thermodynamiques.

Ces études sont fondées sur des techniques mises au point par les physiciens du solide [1].

a) Profil de distribution par collection de la radioactivité des surfaces abrasées. [2]

b) Localisations des ions implantés par canalisation d'émission. [3] Cette technique est particulièrement intéressante pour l'étude de la localisation dans les combustibles (monocristaux UO<sub>2</sub>, ThO<sub>2</sub>) pour lesquels les méthodes classiques (analyse par RBS en canalisation) sont très difficiles à utiliser du fait de l'importance des sections efficaces de rétrodiffusion des ions incidents sur les éléments lourds de la matrice. Elle est aussi très prometteuse pour l'étude de minéraux naturels comme des monocristaux de fluorapatite qui contiennent de nombreux éléments lourds (lanthanides, actinides) à l'état de traces et dont la présence perturbe les mesures classiques.

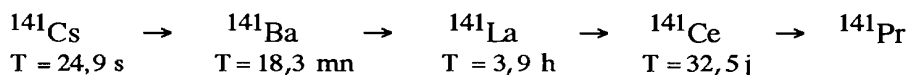
c) Etude de l'environnement chimique de l'espèce implantée (Corrélation Angulaires perturbées [4] et Spectroscopie Mössbauer [5]).

## **Etude de la migration de l'ensemble des éléments inclus dans une chaîne isobarique.**

L'intérêt des faisceaux radioactifs est de pouvoir implanter dans les solides étudiés des isotopes loin de la stabilité, en particulier des produits de fission qui génèrent par désintégration  $\beta^-$  des familles isobariques.

Les variations des propriétés chimiques, des rayons ioniques entre les différents éléments d'une même chaîne isobarique vont jouer un rôle sur les processus de migration et les phénomènes de lixiviation de surface [6]. Dans cette perspective deux propositions d'expériences ont été faites par l'équipe de l'IPNL..

La première (lettre d'intention au Comité d'Expériences ISOLDE [7], en collaboration avec le CEA-Marcoule) concerne l'étude, lors de la lixiviation des verres, du comportement des radionucléides inclus dans la chaîne isobarique suivante :



Les " verres nucléaires " de confinement actuellement utilisés dits (R7T7) sont constitués d'une matrice boroaluminosodosilicatée incluant des oxydes de produits de fission et d'actinides.

Dans l'éventualité d'un stockage géologique le vecteur de dissimulation de la radioactivité confinée dans ce verre sera l'eau. C'est pourquoi on étudie l'altération du verre en milieu aqueux. Au cours de la lixiviation il se forme à la surface du verre une pellicule d'altération amorphe appelée gel. Tous les éléments confinés dans le verre n'ont pas le même comportement à la lixiviation. Des études effectuées soit sur des verres actifs, soit par dopage sélectifs [8] ont montré des différences notables des propriétés de rétention dans le gel entre des alcalins, des alcalino terreux, des terres rares et des actinides. L'implantation sur un verre inactif (de même composition que les verres R7T7) permet d'introduire les isotopes radioactifs en surface (énergie d'implantation maximale 100 keV), et d'étudier, sans avoir recours aux protocoles lourds du travail en haute activité, les comportements des isotopes Ce et Pr qui proviennent de la décroissance d'isotopes du césium implanté.

La deuxième proposition concerne une expérience [9] acceptée par le Comité Scientifique de l'Institut Laue Langevin (Grenoble). Cette expérience se situe dans la problématique posée par le comportement des éléments volatils (iode, gaz rares) produits par décroissance des produits de fission. Il a été observé [10] que ces éléments ont la particularité de s'accumuler dans les défauts puis de désorber. Ces phénomènes provoquent un gonflement des pastilles de combustibles, qui fluent, rentrent en contact avec la gaine favorisant ainsi la migration des radionucléides. Les gaines de combustibles usées sont des systèmes complexes. En effet dans le réacteur le zircaloy est hydruré, oxydé sur les deux faces et contaminé sur la face interne en radionucléides. Ces gaines constituent une barrière de diffusion dans l'éventualité d'un stockage direct des combustibles irradiés. Par ailleurs dans l'option de stockage après retraitement, les gaines de combustible cisailées nommées coques sont enrobées dans du béton en vue d'un entreposage en surface. Elles doivent alors jouer le rôle de matériaux de confinement par rapport aux produits de fission qu'elles contiennent, dans les premiers microns de leur surface.

Dans ce contexte l'intérêt d'implanter les produits des chaînes isobariques  $A = 134$  ou  $A = 135$  dont le maximum de production correspond aux éléments tellure et antimoine mais dont les décroissances conduisent à la formation d'iode et de xénon est évident. La fission neutronique de l'uranium 235 engendrée par les neutrons de l'ILL sur une cible mince d' $\text{UO}_2$ , suivie de l'analyse par le spectromètre Lohengrin des différentes familles isobariques de produits de fission permet leur implantation à des énergies sélectionnées dans une gamme allant du MeV par nucléon à 0.5 MeV par nucléon. La profondeur d'implantation est alors de quelques microns, elle reproduit l'incorporation des produits de fission dans la gaine et permet ainsi une étude réaliste de leurs comportements en fonction de différents paramètres (densité de défauts, taux d'hydruration ...).

Comme il est illustré dans ces exemples, les domaines d'énergie d'implantation, suivant la profondeur explorée, couvrent une gamme d'énergie allant de la centaine de keV au MeV par nucléon.

## Remarques

- Les exemples mentionnés ici mettent en jeu des familles radioactives de produits de fission. Les familles des actinides sont bien évidemment au moins aussi importantes et pourront être étudiées ultérieurement soit directement (dans les cas où des émetteurs de " courtes " périodes sont accessibles) soit en implantant des isotopes émetteurs alpha de la famille des lanthanides.

- Dans les réacteurs hybrides la fission sera engendrée par des neutrons rapides et les matériaux de structure seront soumis aux réactions induites par les neutrons émis à partir de la cible de spallation et dont la distribution en énergie est très large (de 10 à 100 MeV). Les sections efficaces de ces réactions sont étudiées dans le cadre du GDR-GEDEON. Il est clair que la connaissance de la migration des radioisotopes dans les matériaux soumis à de telles conditions d'irradiation est une donnée fondamentale qui conditionne la sûreté des réacteurs hybrides. Pour ces études la possibilité d'implanter les produits des réactions induites par les neutrons de haute énergie sera un atout considérable.

## Remerciements

Les auteurs remercient Messieurs R. Guillaumont et C. Madic, Directeurs du GDR-PRACTIS, pour leur contribution déterminante dans cette proposition

## REFERENCES

- [1] J.G. Correia, NIM in Phys. Res. B 113 (1996) 501
- [2] F. Wenwer et al., Meas. Sci. Technol. 7, (1996) 632-640
- [3] H. Hofsass and O. Linder, Phys. Rep. 201 (991) 121
- [4] G. Schatz et al., Hyp. Int. 34 (1987) 555
- [5] G. Weyer, NIM 186 (1981) 201
- [6] N. Moncoffre et al., Proceeding of the International Workshop on Research with fission fragments (1996) Benediktbeuern, Allemagne
- [7] A. Chevarier, N. Chevarier, N. Millard-Pinard, N. Moncoffre (IPNL), P. Jollivet, E. Vernaz (CEA Marcoule), ISOLDE Letter of intend, Proposal N° CERN/ISC 97-20 ISC/I25.
- [8] H.I. Matzke and E. Vernaz, Journal of Nuclear Materials 201 (1993) 295
- [9] N. Moncoffre, A. Chevarier, N. Chevarier, F. Brossard (IPNL), D. Crusset (ANDRA), H. Faust (ILL), ILL Research proposal N° 3-01-340.
- [10] C. Lemaignan and A.T. Motta, Materials Science and Technology, Vol. 10 B (1994)  
Edité par R.W. Cahn, P. Haasen, E.J. Kramer.